

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H00859

研究課題名(和文) スピン共鳴走査トンネル顕微鏡によるスピンドYNAMIKSの評価と制御

研究課題名(英文) Characterization and control of spin dynamics by spin-resonance scanning tunneling microscopy

研究代表者

長谷川 幸雄 (Hasegawa, Yukio)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：80252493

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,100,000円

研究成果の概要(和文)：走査トンネル顕微鏡による強磁性共鳴実現に向けて、既存装置へのマイクロ波導入を進め、探針試料ギャップでの高周波の検出やフィードバック制御による周波数可変時の強度一定化等を実現することができた。また、数値シミュレーションから強磁性共鳴に必要な試料条件を精査し、そこから磁気異方性の低い系が実験条件に適していることが判明した。磁気異方性の低い系として、ファンデルワールス磁性体に着目し、その単層膜の作製に成功している。さらに共鳴によるスピン偏極の検出ではなく、スピン流検出による共鳴の検出を目指して、スピン偏極ポテンシオメトリの開発にも着手し、超高真空下や低温での動作と確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

個々の原子やナノ磁性体のスピン・磁化情報のダイナミクスを検出することは、これまででない技術であり、その観測は学術的意義が極めて高いと言える。走査トンネル顕微鏡による原子構造・電子状態、さらにはスピン偏極走査トンネル顕微鏡による静的な磁化・スピン情報と組み合わせることによって、強力な磁気分析ツールとなり得る可能性を秘めている。

研究成果の概要(英文)：In order to realize ferromagnetic resonance using a scanning tunneling microscope, we have introduced microwaves into existing equipment and have succeeded in detecting high-frequency waves at the probe-sample gap and in maintaining constant intensity during the sweep of the frequency by feedback control. We have also carefully examined the sample conditions required for ferromagnetic resonance based on numerical simulations, and found that systems with low magnetic anisotropy are suitable for our experimental conditions. As a system with low magnetic anisotropy, we focused on van der Waals magnets and succeeded in fabricating monolayer films of van der Waals magnets. We have also started development of spin-polarized potentiometry to detect resonance by spin current detection instead of spin polarization by the resonance, and confirmed that it works under ultrahigh vacuum and at low temperatures.

研究分野：表面科学・ナノサイエンス

キーワード：走査トンネル顕微鏡 スピン偏極走査トンネル顕微鏡 強磁性共鳴

1. 研究開始当初の背景

デバイスの微細化・低散逸化やスピントロニクスを背景として、ナノサイズの磁性体あるいはナノスケールでの領域での磁気特性の評価に対する要請が高まっている。こうした中、表面の原子やナノスケール構造を視覚化する走査トンネル顕微鏡 (STM) に磁化・スピンの方向の可視化機能を付加したスピン偏極 STM (SP-STM) や、スピン反転・スピン状態間遷移のエネルギー測定を可能にする非弾性散乱トンネル分光 (IETS) といった手法は、その傑出した空間分解能を生かして、単一磁性原子・分子を含むナノサイズ磁性体・スピンの特性に関する知見を与えてくれる。これらの手法により解明されたナノスケールでの磁性現象；例えば、磁壁での詳細なスピン構造・スピンスパイラル状態・単一磁性原子間の磁氣的相互作用などは、これまでの磁性に対する見方を変えるほどのインパクトの高いものであった。

しかしながら、これらのスピン計測手法にも限界はある。スピン偏極 STM による情報は基本的に静的なものであり、スピン・磁化の動的な振る舞いに関しては基本的に及ばない。一方、非弾性散乱トンネル分光は、スピン反転やスピン状態間のエネルギーを与えてくれるが、測定温度で分解能が制限されるため精密測定には向かない。そうした状況において、原子分解能を保ちつつも個々のスピンのダイナミクスを探るプローブの開発が待ち望まれていた。

2. 研究の目的

そこで本研究では、STM 装置にマイクロ波を導入してその共鳴信号を STM 探針で検出するいわゆる電子スピン共鳴 (ESR) を実現することを試みた。一般に、ESR による局所磁場測定の分解能は温度に制限されず、高精度測定が可能である。さらに、効率的なスピンデバイスや量子コンピュータの実現に於いて重要な概念であるスピン緩和現象に関しても ESR を用いて評価可能であり、STM を用いて個々のスピンに対して測定することができれば、単一のスピン・磁性体の動的情報を与える他に例のない画期的なツールとなる。

まずは、走査トンネル顕微鏡 (STM) 装置に電子スピン共鳴 (ESR) の機能を導入し、強磁性体ナノサイズ構造単体や単一磁性分子、さらには単一磁性原子に対して、そのスピン共鳴信号を検出する手法を構築することである。取得できる情報は、基本的に通常の ESR と同じであり、スピンが感じる有効磁場・ g 値・スピン緩和時間等であるが、STM と組み合わせることの最大の利点としては、アンサンブル平均ではなく、単一の (有効) スピン・磁化に対して直接に測定が可能となることにある。試料のバラつきや磁場の不均一性による信号の拡がりや抑えられることから、曖昧さを排除した上での測定が可能となる。さらには、STM による像観察やトンネル分光による電子状態評価を併せることにより、磁性体のサイズ・形状依存性の評価や、局所原子構造・電子状態との関連や相互作用の影響も探ることができる。単一のスピン・ナノサイズ磁性体に対するこうした情報が得ることができる。

3. 研究の方法

STM による電子スピン共鳴 (ESR) 信号の検出は、共鳴による磁化・スピンの変化をスピン偏極 (SP-) STM により捕えることで実現される。磁場印加の下、マイクロ波照射により試料上の磁性体・スピンの共鳴状態になると、それらの持つ磁化・スピンの方向が変化する。それに伴い、探針磁化方向成分の値が変化し、スピン偏極探針により検出されるトンネル電流値も変化する。この変化を測定することで探針下の磁性体・スピンの共鳴状態を検出できる。

STM によるスピン共鳴検出を実現するためには、したがって、磁場印加のもとで安定に作動する STM 装置にスピン偏極検出の機能を付加し、さらに試料表面上へマイクロ波を導入することが必要となる。マイクロ波対応の同軸ケーブルを超高真空装置内に導入し、探針を通して試料表面上に照射されるように設定する。照射時においても STM としての性能が低下せず SP-STM とした機能が保持されることが肝要である。

STM による単一ナノサイズ磁性体での強磁性共鳴 (FMR) の観測を試みる。試料としては、研究室での SP-STM 測定で実績のある Co/Ag(111) や Co/Cu(111)、Fe/W(110) などの系を想定しているが、磁気異方性が小さい系のほうが共鳴周波数を抑えられることから、ファンデルワール的な層状磁性物質として知られる CrBr₂ や CrCl₂ などの単層膜を作製し、試料とすることも検討している。

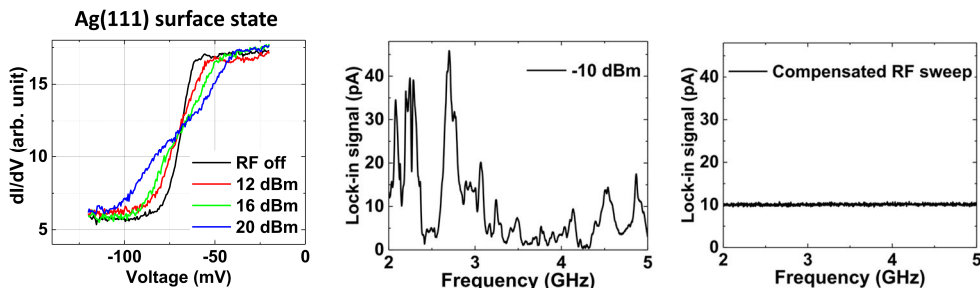
また、共鳴信号検出の方法としては、上記の共鳴によるスピン偏極度の変化を捉える手法に加え、共鳴により誘起されるスピン波を検出する方法も検討しており、そのためのスピン偏極ポテンシオメトリの開発も同時に進めている。

4. 研究成果

(1) 超高真空 STM 装置内への高周波の導入

本研究において目的とする電子スピン共鳴 (ESR) や強磁性共鳴 (FMR) を実現するためには、現有の超高真空低温 STM 装置内の試料・探針間のトンネル接合部分にマイクロ波を導入する必要がある。このためマイクロ波対応の同軸ケーブルを超高真空装置内に導入し、探針を通して試料表面上に照射されるように設定した。さらに照射時においても STS あるいは SP-STM やトンネル分光測定においても性能が低下せず、それらの機能が保持されることを確認している [1,2]。

ESR 信号を検出するためには印加磁場を固定しマイクロ波周波数を掃引するが、試料までのマイクロ波の伝達特性に周波数依存性があるので、一定強度のマイクロ波出射では実際に試料に到達する強度に変動が生じる。そこで、マイクロ波導入に伴いバイアス電圧に誘起される変調電圧を利用して、探針試料間のトンネル接合部でのマイクロ波強度を一定とするようなフィードバック機能を導入したところ、試料での照射強度を一定に保つよう設定することができた。

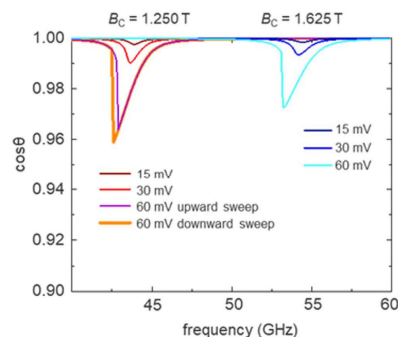


(左)Ag(111)表面上でのトンネル分光スペクトル。マイクロ波導入による変調信号が現れている。(中)スペクトル変化から評価したマイクロ波の伝達関数(右)フィードバック制御により探針試料間でのマイクロ波強度が周波数に寄らず一定となっている。

(2) ナノサイズアイランド構造の強磁性共鳴における磁気異方性の影響評価[3]

本研究では、ナノサイズの原子層磁性アイランド構造のSTMによる強磁性共鳴の観測を一つの目的としている。その際、STM 探針から導入される高周波により及ぼされる電場や磁場の評価や、磁性アイランド構造の特性、特に磁気異方性が共鳴条件に及ぼす影響を評価する目的で、数値計算によるシミュレーションを行った。

高周波による探針先端・試料間における電場・磁場分布を近接場近似により評価するとともに、磁気異方性を有効磁場として考慮した上での共鳴スペクトルを求め、実際に強磁性共鳴を観測する上で必要となる試料や探針の位置に関する条件を明確にすることができた。



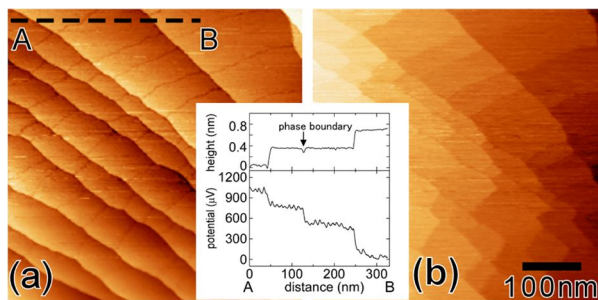
円盤状磁性体に対して数値計算により求めた共鳴スペクトル。試料保磁力 B_c に依存して共鳴周波数が変化する様子が見てとれる。

(3) 走査トンネルポテンショメトリの超高真空・極低温対応化

STM により ESR 信号を検出する方法として、共鳴によるスピン偏極度の変化を捉える方法があるが、この方法の欠点として、共鳴していない状態で十分にスピン偏極度があることが条件となる。このためには磁場によりゼーマン分裂した状態間での占有率に十分な差が現れるように温度を下げる必要がある。一方で、共鳴自体は系の温度に依存せず生じる現象であることから、別のスピン偏極度に依存しない方法を用いれば、測定温度に対する条件を緩めることができる。

スピン共鳴が生じるとその周囲の金属内にスピン波が誘起されることから、スピン波の検出により共鳴の有無を判断できると考え、その検出が可能なスピン偏極ポテンショメトリの開発を進めている。走査ポテンショメトリはゼロカレントの条件から表面での局所ポテンシャル分布を計測する手法であり、スピン波による微弱なポテンシャル変化も検出可能である。

我々の研究室では、これまでも走査ポテンショメトリの開発を進めてきたが、これまでは大気中室温下での測定に留まっていた。そこで本研究では、超高真空下さらには低温下での測定を実現した。超高真空下では清浄表面でのポテンシャル測定を行うことが可能となり、実際我々は



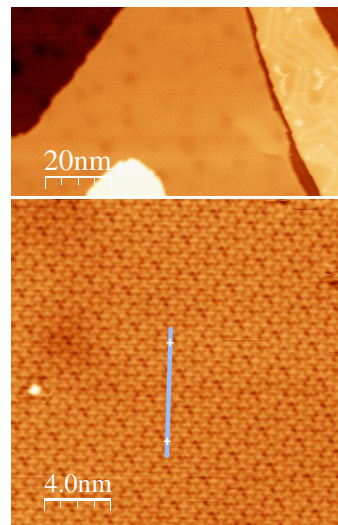
Si(111)表面上での STM 像(左)と同時に測定されたポテンシャル分布像(右)。ステップや位相境界でポテンシャルの段差が観察されている。

シリコンの清浄表面である Si (111)7x7 超周期構造上でのポテンシャル分布測定を行うことができた。同表面では、半導体である基板に対し表面にのみ金属層が形成されており、表面上の単原子層ステップや相境界における電気抵抗率の評価を視覚的に行うことに成功している[4]。

合わせて低温(液体ヘリウム温度)でも動作することを確認することができ、スピン流検出による強磁性共鳴検出への展望を開くことができた。

(4) ファンデルワールス磁性体単層膜の作製

先のシミュレーションによる解析から、磁気異方性が低い系ほど共鳴周波数が低くなり測定に有利になることが判明したことから、磁気異方性の少ない系として CrB₂ などのファンデルワールス磁性体単層膜の作製を試み、蒸着条件を制御することに依って欠陥等が十分少ない良質の単層膜が作製できることを示すことができた。SP-STM による磁化曲線測定から保磁力が小さいことも確認され、このことを利用して共鳴信号を検出することにも成功している。



ファンデルワールス磁性体 CrBr₃ 単層膜の STM 像(基板 Au(111))

<参考文献>

[1] HH Yang, CC Hsu, K Asakawa, WC Lin, Y Hasegawa, "Reduction in magnetic coercivity of Co nanomagnets by Fe alloying" Nanoscale 13 (39), 16719-16725 (2021)

[2] HH Yang, CC Hsu, WC Lin, Y Hasegawa, "Robust perpendicular magnetization of Co nanomagnets against alloy composition" Physical Review B 104 (3), 035422 (2021)

[3] Y Sato, M Haze, HH Yang, K Asakawa, S Takahashi, Y Hasegawa, "Numerical simulations for ferromagnetic resonance of nano-size island structures probed by radio-frequency scanning tunneling microscopy" Japanese Journal of Applied Physics 61, 025001 (2022)

[4] M Hamada, Y Hasegawa, "Role of one-dimensional defects in the electrical transport through surface states" Physical Review B 99 (12), 125402 (2019)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Oguro Fumikazu, Sato Yudai, Asakawa Kanta, Haze Masahiro, Hasegawa Yukio	4. 巻 103
2. 論文標題 Enhanced critical magnetic field for monoatomic-layer superconductor by Josephson junction steps	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 085416 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.085416	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 HAMADA Masayuki, HASEGAWA Yukio	4. 巻 63
2. 論文標題 Electrical Conductivity Across Line Defects on the Si(111)-7×7 Surface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Vacuum and Surface Science	6. 最初と最後の頁 431-436
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.63.431	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hamada Masayuki, Yang Hung-Hsiang, Hasegawa Yukio	4. 巻 59
2. 論文標題 Numerical calculation of the potential distribution on the Si(111)-7 × 7 surface for scanning tunneling potentiometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SN1016 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ab9c40	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 HAZE Masahiro, YOSHIDA Yasuo, HASEGAWA Yukio	4. 巻 65
2. 論文標題 Scanning Tunneling Microscopy Data Analysis Using Sparse Modeling	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Vacuum and Surface Science	6. 最初と最後の頁 78-83
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.78	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tao Wei, Tong Zheng Jue, Das Anirban, Ho Duc-Quan, Sato Yudai, Haze Masahiro, Jia Junxiang, Que Yande, Bussoletti Fabio, Goh K. E. Johnson, Wang BaoKai, Lin Hsin, Bansil Arun, Mukherjee Shantanu, Hasegawa Yukio, Weber Bent	4. 巻 105
2. 論文標題 Multiband superconductivity in strongly hybridized 1T -WTe ₂ /NbSe ₂ heterostructures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094512 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.094512	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Machida T., Yoshimura Y., Nakamura T., Kohsaka Y., Hanaguri T., Hsing C.-R., Wei C.-M., Hasegawa Y., Hasegawa S., Takayama A.	4. 巻 105
2. 論文標題 Superconductivity near the saddle point in the two-dimensional Rashba system Si(111)-3×3-(Tl,Pb)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 064507 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.064507	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sato Yudai, Haze Masahiro, Yang Hung-Hsiang, Asakawa Kanta, Takahashi Susumu, Hasegawa Yukio	4. 巻 61
2. 論文標題 Numerical simulations for ferromagnetic resonance of nano-size island structures probed by radio-frequency scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 025001 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac4556	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yang Hung-Hsiang, Hsu Chuan-Che, Asakawa Kanta, Lin Wen-Chin, Hasegawa Yukio	4. 巻 13
2. 論文標題 Reduction in magnetic coercivity of Co nanomagnets by Fe alloying	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 16719 ~ 16725
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1NR04862G	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Haze Masahiro, Yang Hung-Hsiang, Asakawa Kanta, Watanabe Nobuyuki, Yamamoto Ryosuke, Yoshida Yasuo, Hasegawa Yukio	4. 巻 90
2. 論文標題 Bulk ferromagnetic tips for spin-polarized scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 013704 ~ 013704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5063759	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hamada Masayuki, Hasegawa Yukio	4. 巻 99
2. 論文標題 Role of one-dimensional defects in the electrical transport through Si(111)-7×7 surface states	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.125402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Asakawa Kanta, Oguro Fumikazu, Yoshida Yasuo, Sakai Hideaki, Hanasaki Noriaki, Hasegawa Yukio	4. 巻 58
2. 論文標題 Defect-induced electronic structures on SnSe surfaces	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 S11A06 ~ S11A06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab147d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yang Hung-Hsiang, Lee Chi-Cheng, Yoshida Yasuo, Ikhlas Muhammad, Tomita Takahiro, Nugroho Agustinus, Ozaki Taisuke, Nakatsuji Satoru, Hasegawa Yukio	4. 巻 9
2. 論文標題 Scanning tunneling microscopy on cleaved Mn ₃ Sn(0001) surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-45958-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 吉田靖雄、Howon Kim、Chi-Cheng Lee、長谷川幸雄	4. 巻 54
2. 論文標題 走査トンネル顕微鏡による軌道秩序の直接観察：物質表面に現れる新たな秩序	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 19-28
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Superconductivity at Surfaces studied by Scanning Tunneling Microscopy
3. 学会等名 International Meeting on Thin Film Interfaces and Composite Crystals (IMTFCS2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 長谷川幸雄
2. 発表標題 SPM技術で探る表面物性
3. 学会等名 日本学術振興会ナノプローブテクノロジー第167委員会第100回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長谷川幸雄
2. 発表標題 走査トンネル顕微鏡による局所電子状態分析
3. 学会等名 分析電子顕微鏡討論会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Roles of structural defects on vortices in atomically-thin superconductors
3. 学会等名 Vortex 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Real-space observation of surface orbital order by scanning tunneling microscopy
3. 学会等名 The 10th International Conference on Materials for Advanced Technologies (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Surface states superconductivity by scanning tunneling microscopy
3. 学会等名 Nano and Ultrafast Surface Sciences (NUSS) Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 長谷川幸雄
2. 発表標題 走査トンネル顕微鏡に探る表面電子状態
3. 学会等名 2019 年日本表面真空学会学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Superconductivity at Surfaces studied by Scanning Tunneling Microscopy
3. 学会等名 47th Conference on the Physics and Chemistry of Surfaces and Interfaces (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Superconductivity at Surfaces studied by Scanning Tunneling Microscopy
3. 学会等名 2020 Annual Meeting of the Physical Society of Taiwan (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
シンガポール	Nanyang Technological University			
その他の国・地域(台湾)	National Taiwan Normal University			
米国	University of Southern California			